



TITLE:

Static structure and dynamical structural changes of nanoparticles using XFEL pulses(Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Hiraki(Nishiyama), Toshiyuki

CITATION:

Hiraki(Nishiyama), Toshiyuki. Static structure and dynamical structural changes of nanoparticles using XFEL pulses. 京都大学, 2020, 博士(理学)

ISSUE DATE:

2020-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k22239>

RIGHT:

(続紙 1)

京都大学	博 士 (理 学)	氏名	平木 (西山) 俊幸
論文題目	Static structure and dynamical structural changes of nanoparticles using XFEL pulses (XFEL パルスを利用したナノ粒子の静的構造・動的構造変化の研究)		
(論文内容の要旨)			
<p>近年、X 線自由電子レーザー (XFEL) の登場によって X 線領域で高強度、高コヒーレンスかつ短パルス性 (～千兆分の 1 秒程度) を有する新しい光源が利用可能となり、X 線イメージングを用いた単一粒子構造解析や、X 線非線形光学などの新しい研究領域が開拓されつつある。一方で、XFEL という新しい X 線光源を利用する上では、物質と XFEL の相互作用を理解することが重要となる。本研究では、国内の XFEL 施設である SACLA において、X 線散乱・回折とイオン分光計測等の同時計測を用いた研究手法を新たに開発することで、XFEL や光と物質の相互作用過程の解明を目指した。</p> <p>試料には、原子・分子が数個～数億個程度凝集したナノ粒子を用いた。ナノ粒子は凝縮系の密度を持つ多体粒子系であり、構成粒子数 (サイズ) を系統的に変えることができること、吸収されたエネルギーの外部への散逸が抑制されることから、光と物質の相互作用過程を研究するための標準物質の一つとして研究されてきた。特に、ナノ粒子に高強度 ($\geq 1 \text{ TW/cm}^2$) かつ短パルス (十数フェムト秒 (fs) = 10^{14} 分の 1 秒) のレーザーを照射することで生成される、ナノメートルスケールの高密度プラズマ (ナノプラズマ) の生成過程について研究を行った。ナノプラズマの生成・崩壊過程を解明することは、高強度光による物質の損傷過程に関する基礎的な理解にもつながる。XFEL ではじめて実現される高い時間分解能での X 線構造解析によって、最も基本的な性質である構造の時間変化が観測可能となる。</p> <p>申請者は上記の背景および動機に基づき、キセノン (Xe) ナノ粒子を試料とする実験・解析手法を開発し、主としてナノ粒子の構造に着目して研究を進めた。</p> <p>第一に、XFEL を用いた単一粒子構造解析の実現とその有用性を実証する実験を行った。$10^6 \sim 10^8$ 原子から構成される Xe ナノ粒子を対象として、小角 X 線散乱とイオン・蛍光分光の同時測定を実現する実験・解析手法を開発し、XFEL のパルスごとにナノ粒子からの信号を取得した。単一の XFEL パルスごとに得られる小角散乱信号から、各ナノ粒子のサイズと反応点での XFEL 強度を同定し、同時に計測したイオン・蛍光信号と関連付けることで、信号間に明瞭な相関を見出した。実験から単一 XFEL パルスを利用した単一粒子計測の有効性を示した。同時に、単一粒子の小角 X 線散乱像の解析から、非自明な粒子形状を数十 nm 程度の空間分解能で同定することにも成功している。</p> <p>第二に、時分割の広角 X 線散乱とイオン分光の同時計測を行い、近赤外 (NIR) レーザーパルス (波長 800 nm、パルス幅～30 fs、強度 $4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$) 照射後の Xe ナノ粒子中の結晶構造の変化を、SACLA から供給される硬 X 線パルス (11 keV、パルス幅～10 fs、強度～$4 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$) を用いて観測した。Xe ナノ粒子に面心立方結晶が存在し、その結晶構造が NIR レーザー照射後に数百フェムト秒程度の時間で消失することを実験から明らかにした。さらに単一 X 線パルスごとに取得される Bragg スポットの強度と幅の変化に着目した解析から、スポットの強度の低下に伴い、スポット幅が広がることを見出した。構造変化のモデルに基づいた数値計算を行うことで、NIR レーザー照射後にナノ粒子の結晶構造が、表面から失われることを示した。</p>			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

申請論文では、X線自由電子レーザー (XFEL) から供給される単一X線パルスを用いた単一粒子解析のための実験・解析手法の開発と、これを利用した構造に着目した新しいナノ粒子研究の成果について報告している。XFELにより高強度かつ短パルスなX線レーザーが実現され、単一のXFELによってナノスケールの試料の構造を粒子ごとに解析することが可能となっている。また、XFELが極短パルスであることを活かして、反応中の物質の構造変化を追跡することも可能である。構造変化について、本研究では特に高強度パルス光照射で起こる現象に着目している。高強度パルス光照射により試料の電子状態や構造の著しい変化が起こることが知られており、代表的な現象が試料のプラズマ化である。本研究で取り上げるナノ粒子と呼ばれる孤立多体系を対象とした実験では、ナノスケールの試料がバルク程度の高い電子密度を持つプラズマ (ナノプラズマ) に変化した後に、激しい解離を起こすことが広く報告されている。ナノプラズマの生成・発展の素過程の理解は、これまで主として荷電粒子分光や蛍光分光の実験結果と数値計算に基づいた膨大な研究がされてきた。一方で、ナノプラズマ生成における物質の構造変化については実験的な知見は皆無であった。

申請者はこのような背景を踏まえて、二つの研究を行った。第一の研究では、XFELパルスを用いてX線パルスごとに単一粒子の構造やその大きさなどを特定できることに着目し、Xeナノ粒子を対象とした実験により単一粒子計測の有効性を実証した。第二の研究では、XFELの短パルス性を活かした時分割のX線構造解析実験を実現し、レーザーにより誘起される超高速の構造変化の過程を明らかにした。

Xeナノ粒子を試料とした実験手法の開発および実証実験は、国内のXFEL施設であるSACLAで行われた。申請者は、試料源の開発を始めとした装置開発から、数十万枚におよぶ画像データを含む膨大な実験データの処理手法まで多岐にわたる開発に関与し、特にデータ処理・解析手法について主たる役割を果たした。

得られた主たる成果として、第一の研究では、単一のXFELパルスからのX線散乱信号からXeナノ粒子のサイズと粒子位置でのXFEL強度を評価し、散乱・イオン・蛍光信号を関連付けることで、信号間に強い相関が見られることを示した。単一粒子計測は、多数の粒子からの信号を平均化したものではないため、個別の粒子サイズなどに依存した構造・電離度に関する情報が得られることを示した。第二の研究では、近赤外 (NIR) レーザーパルスにより誘起されるXeナノ粒子の時分割X線回折測定を実現し、Xeナノ粒子からのBraggスポットの強度と幅を解析した。その結果、NIRパルス照射によるXeナノ粒子中の結晶構造の無秩序化が粒子表面から進展すること、さらにその時間スケールは数百fsであることを示した。これらの成果はXFELパルスの短パルス性を用いた時分割計測の有効性を示す新規かつ優れた知見である。

よって、本論文は博士 (理学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和2年1月15日に論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降